

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-123731

(43)Date of publication of application : 11.05.1999

(51)Int.Cl.

B29C 41/24  
B29C 55/02  
G02B 5/30  
// B29K 69:00  
B29L 7:00  
B29L 11:00

(21)Application number : 09-289913

(71)Applicant : TEIJIN LTD

(22)Date of filing : 22.10.1997

(72)Inventor : HOSOI MASAHIRO  
NAGOSHI TAMIAKI  
MIYOSHI CHIEKO

## (54) MANUFACTURE OF RETARDATION FILM

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To eliminate a retardation spot of an extremely small range by holding a film containing a normal amount solvent in a specific length by applying a tension in a conveying direction, holding it at a specific temperature, reducing a thickness speck, drying it, and longitudinally or laterally uniaxially orienting it under specific conditions.

SOLUTION: The film is released from a support, dried and regulated at an inlet of a conveying direction treating step so that a containing solvent amount becomes 8 to 20 wt.%. The film is treated at an atmospheric temperature of  $(T_g+10)$  to  $(T_g+50)^{\circ}\text{C}$  of the film so that a length of the film in the conveying direction becomes 100 to 110% of the length of the film immediately before the conveying direction treating step. It is dried until the solvent content of the film becomes 5.0 wt.% or less. Further, the film is dried by a suspension type dryer until the content solvent of the film becomes 2.0 wt.% or less. Thereafter, the retardation film can be manufactured by uniaxially orienting it 1.1 to 3.2 times in the conveying direction or a direction perpendicular to the conveying direction in an orienting step.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-123731

(43) 公開日 平成11年(1999) 5月11日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	F I
B 2 9 C 41/24		B 2 9 C 41/24
	55/02	55/02
G 0 2 B 5/30		G 0 2 B 5/30
// B 2 9 K 69:00		
B 2 9 L 7:00		

審査請求 未請求 請求項の数 2 O L (全 10 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平9-289913

(22) 出願日 平成9年(1997)10月22日

(71) 出願人 000003001

帝人株式会社

大阪府大阪市中央区南本町1丁目6番7号

(72) 発明者 細井 正広

愛媛県松山市北吉田町77番地 帝人株式会  
社松山事業所内

(72) 発明者 名越 民明

愛媛県松山市北吉田町77番地 帝人株式会  
社松山事業所内

(72) 発明者 三好 千江子

愛媛県松山市北吉田町77番地 帝人株式会  
社松山事業所内

(74) 代理人 弁理士 前田 純博

(54) 【発明の名称】 位相差フィルムの製造方法

(57) 【要約】

【課題】 高分子のキャスト法による位相差フィルムの製造方法において、特にレターデーション値の斑が改良された品質の良好な光学用途に好適な位相差フィルムを製造する。

【解決手段】 延伸前に搬送方向処理工程にて規定量の溶媒を含有したフィルムを、搬送方向に張力をかけつつ特定長に把持し、フィルム雰囲気を特定温度に保ち厚み斑を小さくした後、乾燥し、特定の条件で延伸する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 高分子溶液を支持体上にキャストし、得られたフィルムを乾燥した後、延伸することにより高分子からなる位相差フィルムを製造する方法において、

1. 支持体よりフィルムを剥離し、乾燥して、搬送方向処理工程の入り口で溶媒含有量が8～20重量%となるように調節し、

2. 搬送方向処理工程において、搬送方向のフィルムの長さが、搬送方向処理工程直前におけるフィルムの長さの100%～110%になるように、フィルムの雰囲気温度が $(T_g + 10) \sim (T_g + 50)^\circ\text{C}$ 下、上記フィルムを処理し、

3. 次に、乾燥処理工程において、フィルムをピンチンターにより把持し、フィルム雰囲気温度 $T_g' \sim (T_g' + 55)^\circ\text{C}$ 下、上記フィルムの溶媒含有量が5.0重量%以下となるまで乾燥し、

4. さらに、懸垂型乾燥機処理工程において、該フィルムを懸垂型乾燥機により、フィルムの含有溶媒量が2.0重量%以下となるまで、雰囲気温度 $(T_g'' - 20) \sim (T_g'' + 10)^\circ\text{C}$ 下、乾燥処理し、

5. その後、さらに、延伸工程において、該フィルムを $T_g''' \sim (T_g''' + 45)^\circ\text{C}$ 下、フィルムの搬送方向に又は搬送方向と直交する方向に1.1～3.2倍一軸延伸することを特徴とする位相差フィルムの製造方法。 $(T_g, T_g', T_g'', T_g''')$  ( $^\circ\text{C}$ ) は、それぞれ、搬送方向処理工程、乾燥処理工程、懸垂型乾燥機処理工程および延伸工程の入り口における、溶媒を含有する高分子フィルムのガラス転移温度である。) 20

【請求項2】 高分子溶液がポリカーボネートの溶液であることを特徴とする請求項1記載の位相差フィルムの製造方法。 30

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本願発明は溶液キャストした高分子のフィルムを延伸して位相差フィルムを製造する方法に関する。さらに詳細には、高分子のフィルムを延伸してレターデーション斑(従って、位相差補償フィルムとしたときの色斑、視野角特性の斑)などを発生しない位相差フィルムの製造方法に関するものである。 40

## 【0002】

【従来の技術】熱可塑性高分子フィルムによる位相差板は防眩材料として、また、液晶表示装置における位相差補償板としてその用途が広がっている。高分子フィルムの位相差板は、延伸による分子配向によって生じる複屈折性を利用するものである。この位相差板の製造方法として各種の高分子フィルムを一軸延伸することによって製造する方法が知られている。一般には固有複屈折性の大きいポリカーボネート系樹脂を一軸延伸したものが用いられている。

【0003】位相差板の備えるべき特性は次の4点が特記される。

【0004】1) 透明性が優れることに加えて、フィルムの外観欠点、例えば擦り傷やスクラッチ、フィルムの波打ち等が無く平坦性が良いこと。

【0005】2) レターデーション斑および遅相軸の角度のばらつきが小さいこと。

【0006】液晶表示画面の大型化にともなう、部材も大型化する必要から各種の問題が顕在化している。すなわち、フィルムの小さい範囲でなら比較的容易に制御できた特性値も、大型化にともなう、より広く大きいフィルムでの特性の均一性が要求されてきている。

【0007】例えば、位相差フィルムの面内において相互に10cm離れた2点間のレターデーション値の差が5nmを超えると、液晶表示装置に生じた色斑が肉眼でも識別でき、液晶表示装置として使用できないとされているため、シート状フィルム又はロール状に巻かれたフィルムの巾方向、フィルム搬送方向のどの場所でも相互に10cm離れた2点間のレターデーション値の差が5nm以下であることが要求されている。

【0008】また遅相軸に関しても同様にフィルムロールのどの場所で部材を切りとっても均一であることが要求されている。これは、遅相軸が均一に分布していない場合には、位相差フィルム同士又は他の部材と組み合わせて用いる場合等に軸合わせが煩雑になる問題が生じるためである。

【0009】3) 微小な範囲のレターデーション斑が小さいこと。

【0010】微小な範囲のレターデーション値の差、例えば、フィルム面上で10mm離れた点のレターデーション値の差、が1.5nm以下であることが要求されている。この値を超える場合には偏光板間にこのフィルムを挟んで見た場合に色斑が検知される場合があり得るし、位相差板同士や位相差板と偏光板とを複数枚重ねて液晶表示素子として用いた場合にレターデーション値の斑が加算されることがあり、色斑となって検知されるため問題になる。

【0011】4) 視野角特性を極力良くすること。

【0012】視野角を大きくした場合にも液晶表示装置の表示が良好に見えるようにする必要がある。液晶表示装置の画面の大型化にともない、そこで使用される位相差フィルムも大きくなり必然的により大きな面での特性値の均一性の要求が増大するからである。

【0013】従来の技術として、縦一軸延伸法による位相差フィルムおよびその製造方法に関し、いくつかの技術が提案されている。例えば、特開平8-101306号公報にはフィルムを縦一軸延伸する位相差板の製造方法において、熱可塑性樹脂フィルムの幅方向に温度勾配を設けて縦一軸延伸する方法が開示されている。この方法は確かに効果があると思われるが、延伸前のフィルム 50

の特性に応じて温度勾配を微妙に付ける必要が生じ、実際は製造上の制約条件を大幅に増やすなどの問題がある。すなわち、フィルムの幅方向の温度を微妙に制御できたとしても、レターデーション値は複屈折 $\Delta n$ とフィルム厚みとの積で表されるため、レターデーション値を決める要因はフィルムの厚みの幅方向分布にもあり、原反フィルムが変わる都度そのフィルムの厚み斑に合わせてその温度をフィルム幅方向で微妙に制御する等煩雑な操作も必要になるという問題がある。

【0014】さらに、延伸時に生じる光学斑を解消する方法として延伸時のフィルム中の溶媒量を規定する方法が開示されている。これらの公知文献として特開平4-282212号公報、特開平4-204503号公報、ならびに特開平5-113506号公報等をあげることができる。これらの方法は溶媒量を比較的多くして一軸延伸を行うものである。これらの方法によれば含有溶媒量に応じて見かけ上のガラス転移温度が下がるため、確かに比較的低温で延伸を実施できる利点がある。

【0015】しかし、これらの方法では延伸開始線を幅方向で一直線にするのが難しいことと、搬送方向で延伸点(延伸線)を固定するのが難しく、幅方向、搬送方向のレターデーション斑を生じやすい問題がある。

【0016】特開平4-204503号公報に延伸直前のフィルムの溶媒含有量を固形分基準(乾燥した溶質(固形分)中に含まれる溶媒の量)で2~10%にして延伸する方法、特開平5-113506号公報には、溶媒含有量が固形分基準で3~10%の範囲にあるときに155℃以上、175℃以下の雰囲気内において、延伸する視野角特性に優れた位相差フィルムの製造方法が記載されている。

【0017】これらの方法では、溶媒含有量が多いフィルムを延伸するため部分的に延伸性に差が生じ易く、このため延伸後に複屈折斑が生じる問題があり、レターデーション値を所望の値に合わせることや、微小なレターデーション斑を制御することが難しい。また、延伸時のフィルム中の溶媒量が多いため延伸処理後にも溶媒が残りやすく、この残存溶媒が液晶表示装置用の部品を作成するときの加工時に悪影響を及ぼす場合がある。一方、延伸後の溶媒含有量をさらに少なくしようとすれば、乾燥のための工程を追加する必要があることやそうした場合には、乾燥の加熱温度によりせっかく配向させた分子鎖の緩和が起こり所望のレターデーション値に特性を合わせることが難しいという課題もある。

【0018】多量に残留溶媒を含む場合の延伸法の改良方法として、溶媒含有量をより少なくして一軸延伸する技術が提案されている。特開平8-211224号公報には溶媒含有量が2重量%未満である状態で延伸する技術が開示されているが、この方法は、高濃度溶媒含有によって部分的に延伸性に差が生じこれにより延伸後の膜厚および高分子の配向性、すなわち、複屈折性に斑を生

じることを改良するためのものである。確かにこの方法によれば上記の位相差板の備えるべき特性の内、フィルムの広い面積でのレターデーション値の範囲を小さくできると思われる。しかし、フィルム面上で10mm程度離れた点の微小な範囲のレターデーション値の斑は解消できなかった。

【0019】また、レターデーション値 $\Delta n \cdot d$ が、複屈折値 $\Delta n$ とフィルム厚み $d$ との積により決まることに着目し、微小な範囲の厚み斑を規定した位相差板又は無延伸のフィルムにおいて微小な範囲でフィルム面内の厚み差をコントロールすることで、レターデーション値の差を小さく着色斑ならびにレターデーション斑を抑える技術が提案されている。

【0020】特開平2-59703号公報には厚み(x)のフレ幅が0.1x以下、且つその変化率が0.015x/cm以下である高分子フィルムを一軸に延伸して、レターデーション値のフレ幅が10%以下、その変化率が1.8%/cm以下である位相差フィルムの製造方法が開示されている。

【0021】特開平8-101305号公報には、複屈折性を有する高分子フィルムであって、フィルム面内の任意の点から1cm離れた場所との厚みの差が0.3μm以下であることを特徴とした位相差板によって目的が達成できると報告されている。

【0022】特開平8-101308号公報には、未延伸フィルムの厚みの変化がフィルム搬送方向、幅方向ともに、隣り合った厚い部分と薄い部分の厚みの差が0.5μm以上3μm以下で、ピッチが1mm~40mm以下である波状の変動を有する原反フィルムを一軸又は二軸に延伸してなり、フィルム面内にて相互に10cm離れた任意の2点間のレターデーション値の差が5nm以下であることを特徴とする位相差板が提案されている。

【0023】このように原反フィルムに細かい波状の厚み変動を作ることによって、フィルム面内に厚みの薄い部分を無数に有する原反フィルムになる。フィルム面内に延伸開始点が無数に存在することになりそのため大きな延伸斑は発生しなくなるとされているが、このような厚み変動をフィルム面全体に均一に作ることは實際上極めて難しいという問題がある。

【0024】一方、延伸前のフィルムで厚み斑の少ないものを作る技術は、特に微小な範囲の厚み斑、例えばフィルム搬送方向に連続した狭幅のリップ筋や搬送方向に間欠的に発生する細い筋状の厚み斑を解消するのが難しいという問題を未解決のまま抱えている。また、フィルムの搬送方向にはほぼ直交するような筋状または帯状の厚み斑についてそれを解消するのが難しいという問題は解決されていない。

【0025】このような厚み斑が一軸延伸後も残り位相差フィルムとしての品質を損ねる場合が多いのが現状である。

【0026】上述の位相差板の備えるべき特性の内、「2）」に示した比較的広い面積中でのレターデーション斑は、従来技術によって大幅に改良されてきている。しかしながら、「3）」に示したフィルム面上の微細な範囲のレターデーション値斑の解消技術については、まだ課題が残されている。

【0027】

【発明が解決しようとする課題】本願発明は上述の如き問題点に着目してなされたものであり、レターデーション斑が十分に少なく、特に微小な範囲のレターデーション斑が解消された、視野角特性にも優れた、高性能の位相差補償板の製造方法を提供しようとするものである。

【0028】

【課題を解決するための手段】本願発明者らは上記課題を解決するため、溶液キャストフィルムの延伸のメカニズムを鋭意検討の結果、レターデーション値斑、微小レターデーション値斑ならびに遅相軸のばらつきを抑えるためには、フィルムを規定量の溶媒を含有した状態で縦方向に張力をかけ処理し、ついでピンテンターで処理し、その後懸垂型乾燥機により処理し、更に、縦又は横方向に一軸延伸することにより目的が達成できることを見だし本願発明に到達したものである。

【0029】溶媒を高濃度に含有した状態でフィルムに僅かな張力を掛けると、大きな延伸をする場合とは異なり、フィルム面内で周囲よりも含有溶媒量の多い部分、従って、周囲よりも厚みが局部的に厚い帯状や筋状の見かけのガラス転移点が低い部分が局部的に延伸され、その結果、厚み斑を小さく改良できることが見出された。ここで、見かけのガラス転移点とは溶媒を含有する高分子フィルムのガラス転移温度であり、この温度は乾燥が進むにつれ溶媒含有量の減少とともに上昇するものである。

【0030】またその周囲よりも厚かった帯状や筋状部分の位相差は、フィルムの搬送方向に張力を掛ける処理を行なった後もほとんど変わることがないことが見出された。このことは、その部分についてレターデーション値の測定をした結果、特に分子配向が増したという変化は観察されなかったことにより確かめられた。その結果から、帯状や筋状になっていた部分の構造変化は、この程度の延伸によっては、実質的に起こっておらず、通常の方法では検出できないくらいに小さいものであろうと推定された。すなわち、規定条件（溶媒含有量、温度、伸張率）でフィルムに張力を掛ければ分子配向構造を殆んど変化させることなく厚み斑を小さくできることを見出した。

【0031】またポリカーボネートの一軸延伸時のレターデーション値の延伸温度依存性について、例えば帝人化成（株）製のポリカーボネート（商品名バンライトC-1400QJ）の溶媒を含有しないフィルムを1.1～1.6倍に延伸して位相差フィルムを作る場合、延伸

温度を1℃だけ上げるとレターデーション値は約30nm低下すること、また含有溶媒としてメチレンクロライドが存在するフィルムを延伸する場合では、同様の延伸条件下溶媒を0.1重量%増やすとレターデーション値は約9nm低下すること、フィルムの見かけのガラス転移温度は1.4℃低下すること（特開平7-299828号公報）等の知見を得た。

【0032】これらの事実からレターデーション値斑の制御には、延伸の温度（幅方向にも、フィルム搬送方向にも）延伸の倍率を精密にコントロールすること、また、溶媒を含有する場合、微量の溶媒量で見かけのガラス転移温度が著しく変わるから、延伸に際しては、含有溶媒量も極力均一になるように制御することが必要である事がわかり、本願発明の完成に至ったものである。

【0033】すなわち、本願発明の方法は、高分子溶液を支持体上にキャストし、得られたフィルムを乾燥した後延伸することにより高分子からなる位相差フィルムを製造する方法において、

1. 高分子溶液を支持体上にキャストし、得られたフィルムを乾燥した後、延伸することにより高分子からなる位相差フィルムを製造する方法において、

① 支持体よりフィルムを剥離し、乾燥して、搬送方向処理工程の入り口で含有溶媒量が8～20重量%となるように調節し、

② 搬送方向処理工程において、搬送方向のフィルムの長さが、搬送方向処理工程直前におけるフィルムの長さの100%～110%になるように、フィルムの雰囲気温度が $(T_g + 10) \sim (T_g + 50)^\circ\text{C}$ 下、上記フィルムを処理し、

③ 次いで、乾燥処理工程において、フィルムをピンテンターにより把持し、フィルム雰囲気温度 $T_g' \sim (T_g' + 55)^\circ\text{C}$ 下、上記フィルムの溶媒含有量が5.0重量%以下となるまで乾燥し、

④ さらに、懸垂型乾燥機処理工程において、該フィルムを懸垂型乾燥機により、フィルムの含有溶媒量が2.0重量%以下となるまで、雰囲気温度 $(T_g'' - 20) \sim (T_g'' + 10)^\circ\text{C}$ 下、乾燥処理し、

⑤ その後、さらに、延伸工程において、該フィルムを $T_g''' \sim (T_g''' + 45)^\circ\text{C}$ 下、フィルムの搬送方向に又は搬送方向と直交する方向に1.1～3.2倍一軸延伸することを特徴とする位相差フィルムの製造方法、および、

2. 高分子溶液がポリカーボネートの溶液であることを特徴とする上記1記載の位相差フィルムの製造方法、である。

【0034】なお、 $T_g$ 、 $T_g'$ 、 $T_g''$ 、 $T_g'''$ （℃）は、それぞれ、搬送方向処理工程、乾燥処理工程、懸垂型乾燥機処理工程および延伸工程の入り口における、溶媒を含有する高分子フィルムのガラス転移温度である。この温度は乾燥が進むにつれ溶媒含有量の減少

とともに上昇する。

【0035】本願発明において用いられる高分子については、希望するフィルムの諸特性が得られるものであれば特に制約はない。高分子としては例えばポリカーボネート、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリアリレート、ポリスチレン、トリアセチルセルロースなど従来公知のもので溶液流延法で製膜できるものが挙げられる。すなわち溶液流延法に必要な濃度、粘度を持った溶液を形成する高分子溶液であれば本願発明方法に適用できる。これらのなかでも特にポリカーボネートが好ましい。

【0036】一般に、ポリカーボネートと総称される高分子材料は、重縮合反応で生成され、主鎖が炭酸結合で結ばれているものを総称する。ポリカーボネートはビスフェノール誘導体と、ホスゲンあるいはジフェニルカーボネートとから重縮合反応により得られるものが多い。

【0037】ビスフェノール誘導体については、経済性および達成面からビスフェノールAと呼称されている2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンを使用する芳香族ポリカーボネートが好ましいが、適宜各種ビスフェノール誘導体を選択することで、ポリカーボネート共重合体を構成することが出来る。

【0038】かかる共重合成分としてビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、9, 9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロパン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-2-フェニルエタン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)ジフェニルメタン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)サルファイド、ビス(4-ヒドロキシフェニル)スルホン等をあげることができる。さらに、これらのフェニル基の水素基が一部メチル基やハロゲン基で置換されているものも含む。

【0039】また、一般に炭酸成分の一部をテレフタル酸及び/又はイソフタル酸成分で置き換えたポリエステルカーボネートを使用することも可能である。このような構成単位を、ビスフェノールAをビスフェノール誘導体として用いるポリカーボネートの構成成分の一部に使用することによりポリカーボネートの性質、例えば耐熱性、溶解性を改良することができるため、このような共重合体も本願発明では用いることができる。

【0040】本願発明において用いられるポリカーボネート系樹脂の分子量は、濃度0.5g/dlの塩化メチレン溶液中20℃での粘度測定から求めた粘度平均分子量で10,000以上200,000以下であり、好ましくは20,000以上120,000以下の範囲が用

いられる。粘度平均分子量が10,000より低い樹脂を使用すると得られるフィルムの機械的強度が不足する場合がある。また200,000を越える高分子量になるとドープ粘度が高くなりすぎて溶解やキャスト工程での取り扱い上問題を生じるので好ましくない。

【0041】本願発明において用いられる溶媒としては塩化メチレンを主体とする溶媒や1, 3-ジオキソランを主体とする溶媒が挙げられる。

【0042】ポリカーボネートの溶液を作成する具体的方法としては、塩化メチレン中にポリカーボネートを投入攪拌して溶解する。要すれば、予め塩化メチレン中に剥離助剤として所定量のエタノールを混合しておき、そこにポリカーボネートを投入して室温で攪拌溶解する方法が挙げられる。

【0043】ポリスルホン、ポリエーテルエステル、ポリアリレート、ポリスチレン、トリアセチルセルロースの各溶液についても同様に、塩化メチレンを主体とする溶媒や1, 3-ジオキソランを主体とする溶媒にこれらの樹脂を溶解させることにより調製することができる。

【0044】本願発明において高分子溶液の濃度を10~30重量%、より好ましくは15~25重量%に調製することにより溶液流延法により好適にフィルムを製膜することができる。

【0045】このようにして得られた溶液は、公知の方法でスチールベルトやドラム又は支持体フィルム(一般的にはポリエステル2軸配向フィルム)面上などに、キャストし、乾燥して半乾きの状態で支持体より剥離する。

【0046】剥離後のフィルムの溶媒含有量は、当該フィルムの乾燥等により、搬送方向処理工程の入り口で8~20重量%になるように調節する。本願発明の方法においてはキャストの剥離直後から搬送方向処理工程入口までのガイドロールのあいだで室温~80℃の温度で乾燥することによってこの目的を達成することができる。

【0047】このようにして溶媒含有量を8~20重量%に調節したフィルムは、ついで、搬送方向の長さが元のフィルム長さに対して100%~110%となるように張力を掛けて処理する工程である搬送方向処理工程に通す。100%の場合にも張力を掛けることになるのは収縮があるためである。また、この際のフィルムの雰囲気温度を(Tg+10)~(Tg+50)℃となるように加熱処理する。ここで、Tgとは、搬送方向処理工程の入り口における溶媒を含有した高分子フィルムの、当該溶媒を含有した状態におけるガラス転移温度(℃表示)である。

【0048】含有溶媒量が8~20重量%のフィルムを搬送方向処理工程で上記のように加熱乾燥することにより、溶液キャストの工程で発生した厚み斑(フィルム搬送方向にほぼ直交した厚み斑)を小さくすることができ

【0049】含有溶媒量が8重量%未満で上記のように加熱乾燥した場合は、フィルム全体の平均的な溶媒量が低い、フィルムの厚みが大きい部分と小さい部分の溶媒量の差が小さく、したがってガラス転移点の差が少なく、厚み斑を良好化する効果がなくなる。また、このフィルムをその後の工程で縦方向又は横方向に一軸に延伸してもそのまま斑が残る、微小な厚み斑を解消することができない。

【0050】一方、搬送方向処理工程における含有溶媒量が20重量%を超える場合には、乾燥による溶媒の蒸発が急激すぎるため、厚み斑を良くすることができない。さらに、含有溶媒量が20重量%を超える場合には、微小な気泡がフィルム中に発生すると言う問題がある。

【0051】上記の、フィルムの雰囲気温度が $(T_g + 10) \sim (T_g + 50)^\circ\text{C}$ であるとは、具体的にはポリカーボネート溶液については $50^\circ\text{C} \sim 100^\circ\text{C}$ 、より好ましいフィルム雰囲気温度は $80 \sim 100^\circ\text{C}$ である。

【0052】搬送方向処理工程のフィルム雰囲気温度が $(T_g + 10)^\circ\text{C}$ より低い場合には当該工程中における溶媒の乾燥が十分に行われないうために次ぎの乾燥処理工程において含有溶媒の影響によりフィルムの特性を制御できないことがある。また、フィルム雰囲気温度が $(T_g + 50)^\circ\text{C}$ を超える場合には特に光学特性（レターション値や遅相軸ならびにそれらの斑、ばらつき）が所望の値からはずれてしまうことがある。

【0053】搬送方向処理工程において、溶媒含有フィルムに張力を掛けるための装置は、低速ロール側から高速ロール側へフィルムを通す従来公知の方法をとることができる。上記のロールにはニップロールを用いるか、又はロールのフィルムの抱き角を適度に大きくして摩擦力によりフィルムの滑りを抑えることが好ましい。

【0054】搬送方向処理工程で、フィルム搬送方向に張力をかけ、搬送方向のフィルムの長さが、元の（すなわち、搬送方向処理工程直前におけるフィルムの長さの） $100\% \sim 110\%$ （伸長量 $0\% \sim 伸長量10\%$ ）になるようにして制御することにより、溶液キャストの工程で発生した搬送方向にはば直交する方向の厚み斑を少なくすることができる。

【0055】搬送方向処理工程ではフィルムの乾燥が起これるので、フィルム搬送方向で張力をかけないで自由長とした場合には、フィルム搬送方向のフィルムの長さが元のフィルム長さの $96\%$ 以下（縮少量 $4\%$ ）となるフィルムの収縮が起これるが、搬送方向処理工程で元のフィルムの長さの $100\%$ （縮少量 $0\%$ ）～元のフィルムの長さの $110\%$ （伸長量 $x10\%$ ）となるようにして制御する場合には、フィルム搬送方向を自由長とした場合に比べて伸張力と同時にフィルムの収縮応力が発生し、帯状部や筋状部の厚み斑を良くすることができる。

【0056】これに対し、搬送方向処理工程でフィルム

の長さを $110\%$ を超える値（伸長量が $10\%$ を超える場合）とする場合は、溶媒蒸発による収縮応力が大のためレターション値ならびに遅相軸の大きさや分布のフィルム幅方向のばらつきが大きくなり、本願発明の目的が達成できなくなるので好ましくない。

【0057】搬送方向処理工程の処理を終えたフィルムは、次の乾燥処理工程において、フィルムの幅方向の両端部をピンテンターにより把持し、またその把持の際にその把持幅が当初幅の $95\% \sim 99\%$ となるようにしてフィルム幅方向に極力張力をかけない状態（通常はピンで突き刺し固定して搬送する）で連続的にフィルム雰囲気温度 $T_g' \sim (T_g' + 55)^\circ\text{C}$ になるようにして、フィルムの溶媒含有量が $5.0$ 重量%以下となるまで加熱乾燥する。その把持幅が当初幅の $95\%$ 未満の場合も $99\%$ を超えている場合も、原因は異なるのであろうが、いずれも、レターション値斑が増大し、遅相軸のばらつきが大きくなる。

【0058】なお、ここで、 $T_g'$ は、乾燥処理工程の入り口における溶媒を含有した高分子フィルムの、当該溶媒を含有した状態におけるガラス転移温度（ $^\circ\text{C}$ 表示）である。

【0059】乾燥処理工程の出口においてはフィルムを室温まで冷却しフィルムの構造を固定する。また、ピンテンターのピンで把持した約 $50\text{mm}$ の両エッジ部を切除する。両エッジ部を切除しない場合にはピンの突き刺し孔等から生じた白粉（ピンによる削れ粉）がフィルムの製品になる部分に再付着し汚染してしまうという問題を生じる。

【0060】乾燥処理工程を終えたフィルムは、次いでフィルムをロール懸垂型乾燥装置を用いて乾燥する工程である懸垂型乾燥機処理工程に通膜する。このロール懸垂型乾燥装置を用いた乾燥処理工程においてはフィルムの特性を次のように制御することにより次の延伸の工程のレターション斑を良好化することができる。

【0061】すなわち、 $(T_g' - 20) \sim (T_g' + 10)^\circ\text{C}$ 下、乾燥処理し、含有溶媒量を、懸垂型乾燥機処理工程出口で、 $2.0$ 重量%以下、好ましくは $0.5 \sim 2.0$ 重量%、より好ましくは $0.5 \sim 1.6$ 重量%に制御する。溶媒含有量が上記の範囲を外れる場合、次の延伸の工程のレターション斑を良好化することができず、特性の優れた位相差フィルムを製造することができない。

【0062】懸垂型乾燥機処理工程を終えたフィルムは、さらに、延伸工程で $1.1 \sim 3.2$ 倍搬送方向に又は搬送方向と直交方向に一軸延伸する必要がある。その際、延伸温度とロール間長（延伸スパン）を厳密に制御する。延伸の開始点（又は延伸開始線）から延伸終了までの延伸ニップロール間の長さを延伸前のフィルムの幅に対して $1.5$ 倍以上 $4.0$ 倍以下にすることが好ましい。

【0063】上記延伸ニップロール間長が延伸前フィルム幅の1.5倍以上4.0倍以下であれば、フィルムが延伸された延伸の終了点がこの間にある間にフィルム幅および厚みの自由な変化（幅及び厚みの減少）が起こる、いわば、自由幅一軸延伸、自由厚み一軸延伸となつて、延伸方向の主屈折率を $n_x$ 、延伸方向に直交方向の主屈折率を $n_y$ 、厚み方向の主屈折率を $n_z$ としたときの $n_y$ と $n_z$ とが等しくなるような理想の一軸延伸構造となり、視野角特性が向上する。上記延伸ニップロール間長がフィルム幅に対して1.5倍未満の場合には、フィルム幅方向の自由な収縮に基づく高分子鎖の延伸軸に沿う回転が起こりにくいため、いわゆる面配向が大きい（厚み方向の屈折率が小さい）ままでフィルムの光学的構造が固定される。すなわち、屈折率 $n_y$ と $n_z$ とが等しくなる理想の一軸延伸とはならず、視野角特性は向上しない。

【0064】本願発明に係る延伸工程における延伸の温度は $T_g \sim (T_g + 45)^\circ\text{C}$ である。ここで、 $T_g$ は、延伸工程の入り口における溶媒を含有した高分子フィルムの、当該溶媒を含有した状態におけるガラス転移温度（ $^\circ\text{C}$ 表示）である。延伸温度をこのように設定することによって一軸延伸中におけるフィルムの幅方向の自由収縮により $n_y$ の低下と $n_z$ の上昇がおり易く、また縦方向の弛緩の寄与もある程度効いて、視野角特性を向上させることができる。延伸の温度が $T_g \sim 10^\circ\text{C}$ 未満の場合には、この縦と横方向の分子鎖の弛緩が起こりにくから、このような場合にはこの弛緩の時間を長くとることが必要となり、ロール間の長さを長大なものとするか、又は熱弛緩のための工程が別途必要となり好ましくない。延伸温度が $(T_g + 45)^\circ\text{C}$ より高い場合には分子鎖の配向を上げることが難しくなり、得られるフィルムのレターデーション値の斑が増大するので好ましくない。より好ましい延伸温度は $(T_g + 10) \sim (T_g + 30)^\circ\text{C}$ である。

【0065】延伸開始直前のロールに巻き掛けられたフィルムはニップロールでおさえるが、本願発明における条件によれば問題なく延伸ができる。延伸終了点のロールもフィルムをニップするようにする。ここでフィルムを高温でニップすると、延伸時に発生した小さなピッチの波状斑がロール上で押さえられ、皺が固定されてしまうことがあるのでニップロールの温度を延伸温度より数度低くすることが好ましい。

【0066】延伸は、延伸前ロールと延伸終了後のロール間でフィルムを空気噴流で加熱し、延伸前ロールと延伸終了後のロールとの間でされることが多い。空気噴流は幅方向で均一に熱風がでるようにしたスリットノズルによって、フィルムが延伸ロールを離れる直後に吹き付け、延伸が開始されるようにする。熱風の噴流の速度はフィルムへの熱伝達率を極力大きくするため15～30

m/secの範囲が好ましい。このための装置として、空気浮遊式の熱風装置を好ましく用いることができる。延伸中のフィルム全面にわたって熱風を吹きつける点で、また熱風の風速、熱風の温度を延伸ロール間のフィルム搬送方向で変えることもできる点でこの方法は極めて好都合である。

【0067】その後、延伸終了後のフィルムは冷却しロール状に巻き取られ、製品となる。

【0068】

10 【実施例】以下に実施例により本願発明を詳述する。測定は以下の方法で実施した。なお、本願発明は下記の実施例によって制限されるものではない。

【0069】1) レターデーション値 $R_e$ 、レターデーション値 $R_e$ の範囲、フィルム微小部分のレターデーション値 $R_e$ の差の最大値および遅相軸角度の測定  
フィルムの全幅で搬送方向1mのサンプルについてレターデーション値連続測定器（新王子製紙（株）製の商品名KOBRA-21SDH）を使用して、光線をフィルム面に垂直方向に入射し、5mm間隔でレターデーション値 $R_e$ 、レターデーション値 $R_e$ の範囲、フィルム微小部分のレターデーション値 $R_e$ の差の最大値および遅相軸角度を測定した。

【0070】イ、レターデーション値 $R_e$ 、レターデーション値 $R_e$ の範囲  
測定サンプル全長（フィルム搬送方向1m長）および全幅の範囲のレターデーション値 $R_e$ を5mm間隔で測定した。

30 【0071】また、その全長と全幅のそれぞれについて、最大値と最小値との差を求め、この二つの値のうち大きい方をレターデーション値 $R_e$ の範囲として、均一性の一つの尺度（単位nm）とした。

【0072】通常求められる10cm長におけるレターデーション値 $R_e$ の差ではなく1m長または全幅の範囲のレターデーション値 $R_e$ の最大値と最小値との差をレターデーション値 $R_e$ の範囲としたのは、より、厳しい使用条件に耐えるようにするためである。

【0073】ロ、フィルム微小部分のレターデーション値 $R_e$ の差の最大値

40 測定サンプル全長（フィルム搬送方向1m長）および全幅について5mm間隔で測定した上記のレターデーション値 $R_e$ の、次の隣りの点との間、すなわち10mm間のレターデーション値 $R_e$ の差を測定し、その最大値をフィルム微小部分のレターデーション値 $R_e$ の差の最大値とし、均一性のもう一つの尺度（単位nm）とした。それが大きい場合にはフィルムを偏光板にはさんでみるときにその部分が筋状の色斑となって見える場合がある。

【0074】ハ、遅相軸角度

遅相軸角度は上記レターデーション値 $R_e$ の測定時に同時に測定した。遅相軸角度はフィルムの搬送方向を0°



とし反時計方向をプラスとしたものである。

【0075】なお、測定サンプル全長における測定は、サンプルを幅方向に見たときの中央部分に当たる部位について行ったものである。

【0076】2) フィルム中の溶媒含有量の測定  
溶媒を含有したフィルム約5gを採取し、170℃の熱風乾燥機で一時間乾燥させた後室温まで冷却した。その際、当該乾燥前後の重量を化学天秤で精秤し、その変化率を求めた。これにより固形分基準の溶媒含有量を求めた。具体的には、フィルムを幅方向に5等分して測定した。そしてこれを3回、別々の幅方向について実施し、その平均値を求める方法によった。

【0077】当該乾燥前の重量をa、乾燥冷却後の重量をbとした場合、固形分基準の溶媒含有量の個々の測定値は、 $((a-b)/b) \times 100 (\%)$ で表すことができる。

【0078】3) 視野角特性の測定

視野角特性の測定の場合には、レターデーション値Re及び遅相軸角度の測定に使用したレターデーション連続測定器(新王子製紙(株)製の商品名KOBRA-21SDH)ではなく、自動複屈折率測定装置(新王子製紙(株)製の商品名KOBRA-21ADH)を用いた。

【0079】測定は、フィルムの面に垂直に光線を入射して測定したレターデーション値をRe(0)とし、次いでフィルムサンプルを入射光線に対して遅相軸を回転軸として回転させ、入射角を40°として測定したときのレターデーション値をRe(40)とし、Re(0)とRe(40)との差の絶対値からレターデーション値の変化率を、下記の式により、視野角特性として、求めた。すなわち、この変化率の小さな方が視野角特性に優れることを意味する。

【0080】

【数1】 $|[Re(0) - Re(40)] / Re(0)| \times 100$

【0081】この測定範囲は測定サンプル全長(フィルム搬送方向1m長)および測定サンプル全幅とし、この各々を100mm長単位で区切って方眼を作り、その個々の方眼の中央部で測定した。この視野角特性値は最小値と最大値とを「～」で結んで示した。

【0082】4) ガラス転移温度Tg、Tg'、Tg''、Tg'''の測定

フィルムサンプル約10mgを用い、加熱速度10℃/min.でDSC曲線を求めた。この曲線の立ち下がり(変曲点)部を見かけのガラス転移温度Tg、Tg'、Tg''、Tg'''とした。

【0083】5) 厚み斑の測定

アンリツ(株)製の連続厚み計を用いて、厚み斑を測定した。測定は、全幅でフィルム搬送方向1mのサンプルを採取し、フィルム幅方向全幅、フィルム搬送方向1m\*

レターデーション値Re: 20~40nm(フィルム全幅、5mm間隔で測定

\*について行った。

【0084】厚み斑は、このようにして測定した厚みのデータの内の最大値と最小値の差を幅方向とフィルム搬送方向に別々に求め、その値の内の大きい方を採ったものである。なお、フィルム搬送方向の場合には、当該フィルムを幅方向に見た場合に中央となる部分について1mの長さを測定長とした。

【0085】また、微小な筋状のまたは帯状の厚み斑は、ほとんどの場合その長軸がフィルムの搬送方向に直交する形となるため、フィルム搬送方向に厚みを連続測定し、この測定を幅方向に少しずつずらして繰り返すことにより、厚みのベースラインからのずれとしてμm単位で求めた。

【0086】[実施例1] 帝人化成(株)製のポリカーボネート(商品名バンライトC-1400QJ、粘度平均分子量3.8万、メチレンクロライドを含まないポリマーのガラス転移点は159℃であった。)をメチレンクロライドに溶解し18重量%の溶液を作成した。これをスチールベルト上に流延し乾燥し、厚み斑の小さいフィルムとなし、ベルト面より剥ぎ取った。このフィルムの特性は次の通りであった。

【0087】溶媒含有量 : 18%(フィルム幅方向の平均値、搬送方向処理工程入り口での値)

Tg : 45℃(溶媒を含んだ状態で測定、搬送方向処理工程入り口での値)

フィルム厚み : 70μm

フィルム幅 : 1500mm

厚み斑 : 1μm(フィルム1450mm幅、フィルム長さ1000mm)

微小な筋状の又は帯状の厚み斑は、フィルム搬送方向長さ1000mm中に、0.5~0.7μmの高さで20~25mmの幅のものが3本あった。

【0088】次いで、このフィルムを搬送方向処理工程に通し、搬送方向のフィルムの長さが元の長さの106%になるようにして、フィルムの雰囲気温度が80℃下、フィルムを処理した。

【0089】次いで、このフィルムを、乾燥処理工程において、ピンテンターで把持し、フィルム幅方向の端部を把持幅を95%~99%となるようにしてフィルム幅方向に極力張力をかけず両端を把持された(通常はピンで突き刺し固定して搬送する)状態で連続的にフィルム雰囲気温度120℃になるように加熱乾燥した。なお、乾燥処理工程入り口におけるTg'は68℃であった。

【0090】次いでフィルムを把持したまま室温まで空冷しピンテンター出口にて両エッジ部を50mmずつ切除した。

【0091】かくして得られたフィルムの特性値は下記の通りであった。

【0092】

)

遅相軸角度の値 :  $-30 \sim +30$  度 (フィルム全幅、5 mm 間隔で測定)

溶媒含有量 : 4.0 % (フィルム幅方向の平均値)

Tg :  $110^{\circ}\text{C}$  (溶媒を含んだ状態で測定、懸垂型乾燥機)

処理工程入り口での値)

厚み斑 :  $0.8 \mu\text{m}$  (フィルム1450 mm 幅、フィルム搬送方向長さ1000 mm)、

微小な筋状の又は

帯状の厚み斑 :  $0.2 \sim 0.5 \mu\text{m} / 20 \sim 25 \text{ mm}$  (フィルム搬送方向長さ1000 mm 中) の厚み斑であった。

【0093】この様にして厚み70  $\mu\text{m}$  の無延伸フィルム \* 程、ついで延伸工程に通膜し、その後当該フィルムを冷却工程で処理した。

【0094】このフィルムをさらに懸垂型乾燥機処理工程 \* 【0095】

懸垂型乾燥装置処理工程の条件および得られたフィルムの特性値：

条件：

熱風温度 :  $100^{\circ}\text{C}$

フィルムに掛けた張力 :  $1.5 \text{ kg/cm}^2$

処理時間 : 30 分

得られたフィルムの特性値：

溶媒含有量 : 1.5 % (フィルム幅方向の平均値、延伸工程入り口での値)

Tg :  $145^{\circ}\text{C}$  (溶媒を含んだ状態で測定)

レターデーション値 Re :  $30 \sim 50 \text{ nm}$  (フィルム全幅、5 mm 間隔で測定)

遅相軸角度の値 :  $-20 \sim +20$  度 (フィルム全幅、5 mm 間隔で測定)

延伸工程条件、冷却工程条件および得られたフィルムの \* 【0096】冷却条件：

特性値：

冷却温度  $120^{\circ}\text{C}$ 、冷却時間 5 分、

延伸条件：

30 冷却時にフィルムに張力  $12 \text{ Kg/cm}^2$  を掛けて処理し、次いで室温まで冷却した。

延伸温度  $155^{\circ}\text{C}$ 、延伸倍率 1.25 倍、

延伸のロール間長は延伸前フィルム幅の 1.6 倍。

\* 【0097】

得られたフィルムの特性値：

フィルム厚み :  $54 \mu\text{m}$

フィルム厚み斑 :  $0.3 \mu\text{m}$  (フィルム全幅 1200 mm

、フィルム搬送方向長さ 1000 mm) で極めて小さくなった。

【0098】

レターデーション値 Re の範囲 :  $4 \text{ nm}$  (フィルム全幅 1200 mm、フィルム搬送方向長さ 1000 mm、5 mm 間隔で測定)

フィルム微小部分の

レターデーション値 Re の

差の最大値 :  $1.5 \text{ nm}$  (フィルム全幅 1200 mm、フィルム搬送方向長さ 1000 mm)

遅相軸角度の値 :  $-1.5 \sim +1.5$  度 (フィルム全幅 1200 mm、5 mm 間隔で測定)

視野角特性 :  $7.0 \sim 8.0$

得られたフィルムの位相差フィルムとしての特性は上記のような値となり極めて優れていた。

$^{\circ}\text{C}$ )、15 % (Tg :  $48^{\circ}\text{C}$ ) と変える以外は、実施例 1 と全て同じ条件になるようにして、位相差フィルムを

【0099】[実施例 2, 3] 搬送方向処理工程の入り口におけるフィルムの溶媒含有量を 10 % (Tg :  $67$

50 条件は実施例 1 と同様である)。これらのフィルムは位

相差用として極めて優れたものであった。

\*【表1】

【0100】

\*

	搬送方向処理工程入り 口のフィルムの溶媒含 有量 (%)	レターデーション 値の範囲 (nm) *	微小な範囲のレターデ- ーション値の最大値 (nm) *	遅相軸角度の値 (度) *	視野角特性*
実施例2	10	4	1.3	-1.5~+1.5	7.5~8.5
実施例3	15	4	1.3	-1.5~+1.5	7.5~8.5

\*延伸冷却後に得られたフィルムについての分析値

【0101】【比較例1】搬送方向処理工程にて処理する  
ときの搬送方向のフィルムの長さを元の長さの98.  
0% (縮少量-2.0%) となるようにする以外は実施  
例1と全て同じ条件になるようにして位相差フィルムを  
作成した。

【0102】このフィルムを偏光板間にて観察すると上  
記レターデーション値斑に基づく筋状の色斑が見られ、  
位相差フィルムとして不適なものであった。

【0103】【比較例2】搬送方向処理工程にて処理す  
る前のフィルムを空気で加熱乾燥して、溶媒含有量を5  
%とする以外は実施例1と全て同じ条件になるようにし  
て、位相差フィルムを作成した。

【0104】このフィルムのレターデーション値Reの  
範囲は7nm (フィルム全幅1200mm、フィルム  
搬送方向長さ1000mm、搬送方向の値) であり、こ  
のフィルムのフィルム微小部分のレターデーション値R  
eの差の最大値は3nmであった。

【0105】このフィルムを偏光板間にて観察すると筋  
状の色斑が見られ、位相差フィルムとして不適なもので  
あった。

【0106】【比較例3】一軸延伸直前の溶媒含有量を  
4%とする以外は実施例1と全て同じ条件になるように  
して、位相差フィルムを作成した。

【0107】このフィルムのレターデーション値Reの※

10※範囲は7nm (フィルム全幅1200mm、フィルム  
搬送方向長さ1000mm、搬送方向の値) であり、こ  
のフィルムのフィルム微小部分のレターデーション値R  
eの差の最大値は3nmであった。

【0108】このフィルムを偏光板間にて観察すると筋  
状の色斑ならびに局所的な偏光斑が見られ位相差フィル  
ムとして不適なものであった。

【0109】

【発明の効果】本願発明方法の高分子の位相差フィル  
ムの製造法によって、縦一軸延伸前又は横一軸延伸前に搬  
送方向処理工程にて規定量の溶媒を含有したフィルム  
を、搬送方向に張力をかけつつ特定長に把持し、フィル  
ム雰囲気を特定温度に保ち厚み斑 (特にフィルムの搬送  
方向にはほぼ直交する筋状や帯状の厚み斑) を小さくした  
後、乾燥し、特定の条件で縦一軸延伸又は横一軸延伸す  
ることにより、レターデーション値の斑が極めて小さい  
位相差フィルムを製造することができる。本願発明の高  
分子の位相差フィルムの製造方法によって、特にフィル  
ムの広い面積でのレターデーション値Reの範囲の値が  
極めて小さく、更にフィルムの微小な部分のレターデー  
ション斑が解消された品質の良好な位相差フィルムを製  
造することができる。この結果光学用途に好適な位相差  
フィルムを提供することができる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

F I

B 2 9 L 11:00